#### PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number:

11154523 A

(43) Date of publication of application: 08 . 06 . 99

(51) Int. CI

H01M 8/02 H01M 4/86 H01M 8/10

(21) Application number: 09318477

(71) Applicant:

**FUJI ELECTRIC CO LTD** 

(22) Date of filing: 19 . 11 . 97

(72) Inventor:

**ENAM! YOSHIAK!** 

# (54) CELL AND STACK OF SOLID POLYMER

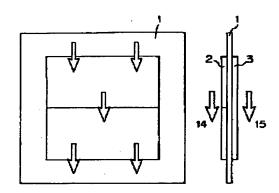
ELECTROLYTE FUEL CELL

COPYRIGHT: (C)1999,JPO

### (57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To prevent degradation of battery performance due to partial drying of an electrolytic membrane or excessive electrode leakage by a part close to a gas supply port side of a gas transmission layer of an anode and/or cathode having permeability smaller tan the part close to a gas exhaust port side.

SOLUTION: A gas transmission layer 2 on a cathode side is composed of a material with its different porosity. That is, at a part close to an supply port for air that is an oxidizer, a gas transmission layer 2 is made of carbon paper to increase thickness, and the porosity is decreased to lower gas permeability. At a part close to an air exhaust port, the gas transmission layer 2 made of like carbon paper, and however, thickness is reduced, the porosity is increased, and gas permeability is increased. Thereby, gas transmission inhibit due to water at a humid water exhaust exit side generated by reaction never occurs.



### (19)日本国特許庁 (JP)

# (12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

# 特開平11-154523

(43)公開日 平成11年(1999)6月8日

(51) Int.Cl.6		識別記号	FΙ		
H01M	8/02		H 0 1 M	8/02	<b>R</b> .
	4/86			4/86	M
•	8/10			8/10	

審査請求 未請求 請求項の数9 OL (全 5 頁)

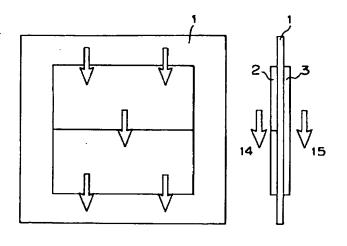
40.43 (1) (1000 mil 100)			
(21)出願番号	特願平9-318477	(71)出願人	000005234
			富士電機株式会社
(22)出廣日	平成9年(1997)11月19日		神奈川県川崎市川崎区田辺新田1番1号
•		(72)発明者	榎並 義晶
			神奈川県川崎市川崎区田辺新田1番1号
			富士電機株式会社内
		(74)代理人	弁理士 谷 義一 (外3名)

# (54) 【発明の名称】 固体高分子電解質型燃料電池の単セルおよびスタック

# (57) 【要約】

【課題】 固体高分子電解質型燃料電池において、燃料ガスや酸化剤ガスの供給口側では、反応の結果生じる水に起因する水蒸気の分圧が必ず異なるため、それぞれの場所に応じた電極ガス透過性が必要となる。

【解決手段】 電解質膜の両面にそれぞれ燃料ガスおよび酸化剤ガスを透過させるためのガス透過層と触媒層とを具えるアノードおよびカソードを配置して構成される固体高分子電解質型燃料電池の単セルにおいて、前記アノードおよび/またはカソードのガス透過層のガス供給口側に近い部分が、ガス排出口側に近い部分よりも、小さい透過度を有することを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池の単セルの提供。



1

#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】 電解質膜の両面にそれぞれ燃料ガスおよび酸化剤ガスを透過させるためのガス透過層と触媒層と を具えるアノードおよびカソードを配置して構成される 固体高分子電解質型燃料電池の単セルにおいて、

前記アノードおよび/またはカソードのガス透過層のガス供給口側に近い部分が、ガス排出口側に近い部分よりも、小さい透過度を有することを特徴とする固体高分子 電解質型燃料電池の単セル。

【請求項2】 請求項1に記載の固体高分子電解質型燃料電池の単セルにおいて、燃料ガスと酸化剤ガスとが互いに対向する方向に通流することを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池の単セル。

【請求項3】 請求項1または2に記載の固体高分子電解質型燃料電池の単セルにおいて、

透過度の小さい方のガス透過層は、気孔率を小さくおよび/または厚さを大きく、透過度の大きい方のガス透過層は、気孔率を大きくおよび/または厚さを小さくしたものであることを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池の単セル。

【請求項4】 請求項3記載の固体高分子電解質型燃料電池の単セルにおいて、

厚さの大きいガス透過層は、厚さの小さいガス透過層よりも弾性係数が小さいことを特徴とする固体高分子電解 質型燃料電池の単セル。

【請求項5】 請求項1ないし4のいずれかに記載の固体高分子電解質型燃料電池の単セルを複数個積層して構成することを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池のスタック。

【請求項6】 電解質膜の両面にそれぞれ燃料ガスおよび酸化剤ガスを透過させるためのガス透過層と触媒層とを具えるアノードおよびカソードを配置して構成される固体高分子電解質型燃料電池の単セルまたは前記単セルを複数個積層して1単位としたセルブロックを、複数個積層して構成される固体高分子電解質型燃料電池のスタックにおいて、

該スタックに供給される前記燃料ガスおよび/または酸 化剤ガスが、前記スタックを構成する複数の単セルまた は複数のセルブロックを直列に通流し、

かつ、前記燃料ガスおよび/または酸化剤ガスが最初に 通流する単セルまたはセルブロックのガス透過層の透過 度が、最後に通流する単セルまたはセルブロックのガス 透過層の透過度よりも小さいことを特徴とする固体高分 子電解質型燃料電池のスタック。

【請求項7】 請求項6に記載の固体高分子電解質型燃料電池のスタックにおいて、燃料ガスと酸化剤ガスとが互いに対向する方向に通流することを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池のスタック。

【請求項8】 請求項6または7に記載の固体高分子電解質型燃料電池のスタックにおいて、

透過度の小さい方のガス透過層は、気孔率を小さくおよび/または厚さを大きく、透過度の大きい方のガス透過 届は気孔率を大きくおよび/または厚さを小さくしたものであることを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池のスタック。

【請求項9】 請求項8に記載の固体高分子電解質型燃料電池のスタックにおいて、

厚さの大きいガス透過層は、厚さの小さいガス透過層よりも弾性係数が小さいことを特徴とする固体高分子電解 質型燃料電池のスタック。

#### 【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】この発明は、固体高分子電解 質型燃料電池の単セル、および固体高分子電解質型燃料 電池の単セルを複数個積層して構成される固体高分子電 解質型燃料電池のスタックに関するものである。

[0002]

【従来の技術】一般に固体高分子電解質型燃料電池の最 小発電単位であるセルの構成は図4のように表わされ

る。膜電極接合体(MEA: Membrane Electrode Assem 20 bly)は、電解質膜1の両面に、それぞれ貴金属(主とし て白金)を含むカソード側触媒層10およびアノード側 触媒層11を接合して形成される。MEAの外側には、 カソード側触媒層10およびアノード側触媒層11と対 向して、それぞれカソード側ガス透過層2およびアノー ド側ガス透過層3が配置される。これによりそれぞれカ ソード16およびアノード17が構成される。これらの ガス透過層2および3は、それぞれ酸化剤ガスおよび燃 料ガスを通過させると同時に、電流を外部に伝える働き をする。広義のMEAには、これらのガス透過層2およ び3を含めることもある。これらをカソード側セパレー タ12およびアノード側セパレータ13で挟むことで単 セルが構成される。このセルを多数積層したものをスタ ックという。実際の発電システムでは、通常、燃料電池 といえばスタックのことを指している。

【0003】電解質膜にはフッ素系の高分子材料が最も一般的に使用されている。代表的な市販の電解質膜にはデュポンのNation(登録商標)がある。これらの電解質膜の特徴は他の高分子電解質と比較してプロトン伝導性が高いことと、電解質膜が乾燥すると急激にプロトン伝導性が低下することである。このため固体高分子電解質型燃料電池では常に電解質膜を適当な含水状態に制御することが求められる。通常は、燃料ガスや酸化剤ガスを加湿することによって電解質膜の乾燥を防止する。

【0004】固体高分子電解質型燃料電池では、発電の 過程で次のような反応が起きる。

[0005]

【化1】

 $H_1 \rightarrow 2H^+ + 2e^- \qquad (7/-F)$ 50  $2H^+ + 1/2O_1 + 2e^- \rightarrow H_1 O$  10

20

30

(カソード)

H<sub>1</sub> + 1/2O<sub>1</sub> → H<sub>2</sub> O (全反応) 反応によって生成する水は主にカソード側に出てくる が、一部は電解質膜を透過してアノード側にも出る。し たがって、反応によって水素と酸素が消費され、その結 果生じる水の水蒸気が加わるために、燃料ガスや酸化剤 ガスの排出口付近では、常にその供給口付近よりも水蒸 気分圧が高くなる。

#### [0006]

【発明が解決しようとする課題】従来技術では、セルの電極部を構成するガス透過層は、電極の面内で均一な物性を有している。前述のように、燃料ガスや酸化剤ガスの排出口付近では水蒸気分圧が高くなっているので、水蒸気の凝縮に伴うガスの透過阻害が発生しやすい。またガスの拡散透過を防止するために、ガスの供給口付近における水蒸気分圧を低下させた場合には、ガスの供給口部分の電解質膜が乾燥して電池性能の低下を引き起こす、という問題が生じる。

【0007】このように、燃料ガスや酸化剤ガスの供給口付近と排出口付近とでは、反応の結果生じる水に起因する水蒸気の分圧が必ず異なるため、それぞれの場所に応じた電極のガス透過性が必要となる。

#### [0008]

【課題を解決するための手段】本発明は上記したような 課題を解決するために提供されるものである。

【0009】すなわち、本発明の第1の態様は、電解質膜の両面にそれぞれ燃料ガスおよび酸化剤ガスを透過させるためのガス透過層と触媒層とを具えるアノードおよびカソードを配置して構成される固体高分子電解質型燃料電池の単セルにおいて、前記アノードおよび/またはカソードのガス透過層のガス供給口側に近い部分が、ガス排出口側に近い部分よりも、小さい透過度を有するように構成した固体高分子電解質型燃料電池の単セルである。

【0010】本発明の第2の態様は、前述した固体高分子電解質型燃料電池の単セルにおいて、燃料ガスと酸化剤ガスとが互いに対向する方向に通流するように構成した固体高分子電解質型燃料電池の単セルである。

【0011】本発明の第3の態様は、前記に記載の固体高分子電解質型燃料電池の単セルにおいて、透過度の小さい方のガス透過層は、気孔率を小さくおよび/または厚さを大きく、透過度の大きい方のガス透過層は、気孔率を大きくおよび/または厚さを小さくするように構成した固体高分子電解質型燃料電池の単セルである。

【0012】本発明の第4の態様は、前記に記載の固体 高分子電解質型燃料電池の単セルにおいて、厚さの大き いガス透過層は、厚さの小さいガス透過層よりも弾性係 数を小さくするように構成した固体高分子電解質型燃料 電池の単セルである。

【0013】本発明の第5の態様は、前記の固体高分子

電解質型燃料電池の単セルを複数個積層するように構成 した固体高分子電解質型燃料電池のスタックである。

【0014】本発明の第6の態様は、電解質膜の両面にそれぞれ燃料ガスおよび酸化剤ガスを透過させるためのガス透過層と触媒層とを具えるアノードおよびカソードを配置して構成される固体高分子電解質型燃料電池の単セルまたは前記単セルを複数個積層して1単位としたセルブロックを、複数個積層して構成される固体高分子電解質型燃料電池のスタックにおいて、該スタックに供給される前記燃料ガスおよび/または酸化剤ガスが、前記スタックを構成する複数の単セルまたは複数のセルブロックを直列に通流し、かつ、前記燃料ガスおよび/または酸化剤ガスが最初に通流する単セルまたはセルブロックのガス透過層の透過度を、最後に通流する単セルまたはセルブロックのガス透過層の透過度よりも小さくするように構成した固体高分子電解質型燃料電池のスタックである。

【0015】さらに、本発明の第7~第9の態様は、前記に記載の固体高分子電解質型燃料電池のスタックにおいて、前記第2~第4の態様と同様の構成を有するようした固体高分子電解質型燃料電池のスタックである。

#### [0016]

【発明の実施の形態】本発明による固体高分子電解質型燃料電池の単セルにおいて用いられる電解質膜は、フッ素系イオン交換樹脂膜(パーフルオロカーボンスルホン酸ポリマー)であり、典型的にはデュポン社製のNafion(登録商標)が用いられる。

【0017】また、用いられる触媒層としては、貴金属 触媒からなるものであり、典型的には白金触媒、白金担 持触媒が挙げられる。

【0018】本発明では、アノードおよびカソードにおいて、触媒層の上に、燃料ガスおよび/または酸化剤ガスの供給口側に近い部分と、排出口側に近い部分とで、ガス透過度が互いに異なる多孔質のガス透過層が設けられる。すなわち、燃料ガスや酸化剤ガスの供給口側では、低い加湿量でも電極の電解質膜が乾燥しないようにするために、ガス透過膜の透過度を低くして水蒸気の透過量を低下させる。ガスの排出口側では、生成した水による電解質膜の透過阻害を防止するために、ガス透過層の透過度を高くする。

【0019】本発明において、ガス透過層の「ガス透過度」とは、具体的には、該透過層の厚みおよび気孔率により決定される。すなわち、透過層の厚みを大きく、かつ/または気孔率を小さくすることにより、ガス透過性は低下し、透過層の厚みを小さく、かつ/または気孔率を大きくすることにより、ガス透過性は上昇する。ガス透過層のガス供給口側に近い部分と、ガス排出口側に近い部分とのガス透過率の差は任意に設定することができ、ガス透過層に用いられる材料の厚みおよび/または気孔率を適宜調整することにより、調整される。

-3-

50

20

【0020】また、本発明のガス透過層は、さらに、ガス供給口側に近い部分が、ガス排出口に近い部分よりも小さな弾性係数を有する(すなわち、応力に対する歪みが大きい)ように構成されることが好ましい。

【0021】このようなガス透過性の差異を実現する多れ質材料は、ガス供給口側に近い部分とガス排出口側に近い部分において、上記のような厚みおよび/または気孔率、あるいは弾性係数の差を実現できる限りにおいて同一の材料であっても、あるいは異なる材料であってもよい。例えばカーボンペーパー(東レ社製TGPH-120)などが挙げられる。

【0022】このようにして形成されるカソードおよび アノードは、さらに外側をセパレータにより挟み込まれ て、単セルを形成する。ここで用いられるセパレータの 材料としては、従来公知のものが使用可能であり、例え ばカーボングラファイト材などが挙げられる。

【0023】さらに、本発明では、それぞれ、カソードおよび/またはアノードのガス透過層のガス透過性が異なる固体高分子電解質型燃料電池の単セルを複数個積層して、スタックを形成する。この場合、スタックに供給される燃料ガスおよび/または酸化剤ガスの、ガス供給口側に近い部分に配置される単セルでは、アノードおよびカソードのガス透過層は、ガス排出口側に近い部分に配置される単セルにおいて用いられるガス透過層よりも、ガス透過度を小さくなるようにする。

【0024】以下の実施例により、本発明をさらに詳細に説明する。

【0025】(実施例1)本実施例による単セルの構造を図1に示す。

【0026】本実施例では、カソード(空気極)側のガ 30 ス透過層のみを、厚さや気孔率の異なる材料で構成した。すなわち、酸化剤ガスである空気の供給口に近い部分では、ガス透過層2の材料としてカーボンペーパーを用い、厚さを大きく(すなわち、0.4 mm)および気孔率を小さく(すなわち、65%)して、ガスの透過性を低くした。一方、空気の排出口に近い部分では、逆にガス透過層2の材料として同じカーボンペーパーではあるが、厚さを小さく(すなわち、0.1 mm)および気孔率を大きく(すなわち、78%)して、ガスの透過性を高くした。

【0027】この実施例では、アノード側のガス透過層 3は均一な構造としたが、必要に応じて異なる透過性を 持つ構造にすることもできる。なお、図1には空気流れ 方向14および燃料ガス流れ方向15が示してある。

【0028】この方法により、ガス供給口に近い側は乾燥をはじめることなく、また反応により生成した水分の多い排出口側での水分によるガスの透過阻害はみられなかった。

【0029】(実施例2)図2は、本発明の実施例2における単セルの断面図を示している。

【0030】本実施例では、アノード側もカソード側も、ガス透過層では、ガス供給口に近い側の部分には比較的弾性に富んだ厚い材質(高弾性ガス透過層9)としてカーボンクロスを、およびガス排出口に近い側の部分では、比較的弾性に乏しく、かつ気孔率が高く透過性の大きい材質材料としてカーボンペーパーを用いた。図示するように、燃料ガスと空気とを対向させて流すことにより、アノード側とカソード側の低透過性を必要とする領域(高弾性ガス透過層9を配置した領域)が重なり合わないようにした。

【0031】このような構成とすることにより、酸化剤供給口と燃料ガス排出口とが、および、酸化剤排出口と燃料ガス供給口とが、電解質膜を挟んで対向する位置に配置されることとなるので、電解質膜乾燥が生じ易いガス供給口同士、水蒸気分圧の高くなるガス排出口同士が対向して位置する場合に比べ、両電極の乾燥、濡れがよりバランスされることとなり好ましい。

【0032】さらに、厚さの厚い方のガス透過層材(すなわちガス供給口に近い側の部分)として、薄い方のガス透過層材よりも弾性係数の小さいものを用いたので、小さい締付荷重で厚い方のガス透過層を圧縮でき、両者のガス透過層の厚さのギャップを解消することができる。

【0033】(実施例3)図3は本発明の実施例3に係る構成図で、単セルを複数積層してスタックを構成したものである。

【0034】ここにおいて、個々のセル8は均一なガス透過層を有する。セルは2つ以上のグループに分けられ、スタックの酸化剤ガス(空気)の供給口6に近いグループから、排出口7に近いグループへと、空気が直列に通過する。最初に通過するグループに属するセルは、ガス透過性の小さいガス透過層を有する電極を持ち、最後に通過するグループに属するセルはガス透過性の大きいガス透過層を有する電極を有する。なお、このスタック4においては両側の締め付け板5によって固定される。

【0035】この方法により、前述した実施例1と同様の結果を得ることができるとともに、さらに本実施例では、個々のセルは均一なガス透過層を有するため、上記 実施例1の単セルを積層したスタックと比較して、部品点数が少なく、かつ組み立て工程数が少なくてすむ、という利点を有する。

#### [0036]

【発明の効果】上記したように、燃料ガスおよび/または酸化剤ガスの供給口および/または排出口側で、それぞれの水蒸気分圧に応じたガス透過性を有するガス透過層を備えた電極を使用することにより、電解質膜の部分的な乾燥や電極の過剰な濡れによる電池性能の低下を防止することができる。

50 【0037】またアノード側とカソード側の反応ガス流

れ方向を対向させることで電解質膜を介した水分の移動 により、電解質の乾燥防止効果を高めることができる。

【0038】さらにガス透過性の低い透過層を、厚い弾力のある材料にすることで、低い締めつけ圧力でも確実な電気的接触を得ることができる。すなわち、低い圧力で大きな透過層の変形が起るので、接触面積が増加し、電気抵抗を低減できるのである。

# 【図面の簡単な説明】

【図1】実施例1の電解質と電極の平面図/断面図である。

【図2】実施例2のセル断面図である。

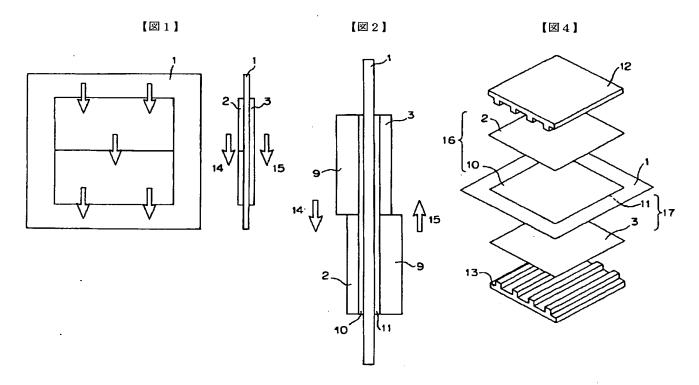
【図3】実施例3のスタック側面を表わし空気の流れを示す図である。

【図4】従来技術に一般的なセルの構成を示す図である。

#### 【符号の説明】

#### 1 電解質膜

- 2 カソード側ガス透過層
- 3 アノード側ガス透過層
- 4 スタック
- 5 締め付け板
- 6 スタックの空気供給口
- 7 スタックの空気排出口
- 8 セル
- 9 高弾性ガス透過層
- 10 カソード側触媒層
- 10 11 アノード側触媒層
  - 12 カソード側セパレータ
  - 13 アノード側セパレータ
  - 14 空気流れ方向
  - 15 燃料ガス流れ方向
  - 16 カソード
  - 17 アノード



【図3】

